

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



2005

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
15. Juli 2004 (15.07.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2004/058911 A3**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: C09K 11/06,  
H01L 51/30, H05B 33/14, C07C 13/72

Veitshöchheim (DE). STÖSSEL, Philipp [DE/DE];  
Hortensiengasse 17, 65929 Frankfurt am Main (DE).  
SPREITZER, Hubert [DE/DE]; Bruno-Taut-Strasse 20,  
68519 Viernheim (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/013927

(74) Anwälte: DÖRR, Klaus usw.; Industriepark Höchst, Geb.  
F 821, 65926 Frankfurt (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:

9. Dezember 2003 (09.12.2003)

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): CN, JP, KR, US.

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): europäisches Patent (AT,  
BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR,  
HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

(30) Angaben zur Priorität:

102 61 545.4 23. Dezember 2002 (23.12.2002) DE

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

(71) Anmelder (*für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US*): COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS GMBH [DE/DE]; 65926 Frankfurt (DE).

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen  
Recherchenberichts: 8. Dezember 2005

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (*nur für US*): VESTWEBER, Horst [DE/DE]; Denkmalstrasse 6, 34330 Gilserberg (DE). GERHARD, Anja [DE/DE]; Humboldtstrasse 29, 97209

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.



**WO 2004/058911 A3**

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(54) Bezeichnung: ORGANISCHES ELEKTROLUMINESZENZELEMENT

(57) Abstract: The invention relates to the improvement of organic electroluminescent devices. Said devices are characterised in that the emitting layer (EML) consists of a mixture of two substances, one having hole-conductive characteristics and the other having light-emitting characteristics and that at least one of said substances contains a spiro-9,9'-difluoro unit.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft die Verbesserung Organischer Elektrolumineszenz-Vorrichtungen, die dadurch gekennzeichnet ist, dass die emittierende Schicht (EML) aus einer Mischung zweier Substanzen besteht, wobei die eine lechleitende Eigenschaften und die andere lichtemittierende Eigenschaften aufweist und mindestens eine dieser Verbindungen eine Spiro-9,9'-difluoreneinheit enthält.

**BEST AVAILABLE COPY**

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International Application No PCT/EP 03/13927
---

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C09K11/06 H01L51/30 H05B33/14 C07C13/72
--

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 7 C09K H01L H05B C07C H01K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, INSPEC, COMPENDEX, CHEM ABS Data

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 02/077060 A (COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS ; PARHAM AMIR (DE); BECKER HEINRICH (DE)) 3 October 2002 (2002-10-03) page 23, line 19 - line 21 page 25, paragraphs 3,4 -----	1-11
X	EP 1 220 339 A (SEMICONDUCTOR ENERGY LAB) 3 July 2002 (2002-07-03) paragraphs [0233] - [0235]; claims -----	1-8, 11-16
X	SALBECK J; YU N; BAUER J; WEISSÖRTEL F; BESTGEN H: "Low molecular organic glasses for blue electroluminescence" SYNTHETIC METALS, vol. 91, 1997, pages 209-215, XP002277588 the whole document ----- -/-	1-8, 11-16

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the International filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the International filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"W" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  22 April 2004	Date of mailing of the international search report  04.08.2004
Name and mailing address of the ISA  European Patent Office, P.O. Box 5818 Patentsteenweg 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax. 010 651 0904 Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer  Lehnert, A

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 03/13927

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 02/051850 A (COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS ; BECKER HEINRICH (DE); DROTT JACQUELINE) 4 July 2002 (2002-07-04) page 15, line 7 - line 10 -----	1-8, 11-16
A	SPREITZER H ET AL: "WHITE AND BLUE TEMPERATURE STABILE AND EFFICIENT OLEDs USING AMORPHOUS SPIRO TRANSPORT AND SPIRO EMITTING COMPOUNDS" PROCEEDINGS OF THE SPIE, SPIE, BELLINGHAM, VA, US, vol. 4105, 31 July 2000 (2000-07-31), pages 125-133, XP008017672 ISSN: 0277-786X the whole document -----	1-8, 11-16
A	WU C C ET AL: "HIGHLY BRIGHT BLUE ORGANIC LIGHT-EMITTING DEVICES USING SPIROBIFLUORENE-CORED CONJUGATED COMPOUNDS" 22 July 2002 (2002-07-22), APPLIED PHYSICS LETTERS, AMERICAN INSTITUTE OF PHYSICS, NEW YORK, US, PAGE(S) 577-579 , XP001130317 ISSN: 0003-6951 the whole document -----	1-8, 11-16
A	TOKITO S ET AL: "Influence of hole transporting material on device performance in organic light-emitting diode" THIN SOLID FILMS, ELSEVIER-SEQUOIA S.A. LAUSANNE, CH, vol. 363, no. 1-2, March 2000 (2000-03), pages 290-293, XP004189329 ISSN: 0040-6090 the whole document -----	1-8, 11-16

**BEST AVAILABLE COPY****INTERNATIONAL SEARCH REPORT**International application No.  
EP03/13927**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3.  Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

**SEE SUPPLEMENTAL SHEET**

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

1-8, 11(part) -16(part)

**Remark on Protest**

The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
 No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
EP03/13927

The International Searching Authority has determined that this international application contains multiple (groups of) inventions, namely:

1. claims 1-8, 11 (part) – 16 (part)

organic electroluminescent device, containing an emitting layer with a mixture of a hole-conductive material and an emission material, containing one or a plurality of spiro-9,9'-bifluorene units;

2. claims 9, 10, 11 (part) – 16 (part)

spiro-9,9'-bifluorene compounds of formula (I), as described in claim 9; use of these compounds in organic electroluminescent devices.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No  
PCT/EP 03/13927

Patent document cited in search report	Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 02077060	A 03-10-2002	WO EP US	02077060 A1 1381639 A1 2004135131 A1	03-10-2002 21-01-2004 15-07-2004
EP 1220339	A 03-07-2002	CN EP JP SG TW US	1362747 A 1220339 A2 2002324680 A 93298 A1 545080 B 2002121860 A1	07-08-2002 03-07-2002 08-11-2002 17-12-2002 01-08-2003 05-09-2002
WO 02051850	A 04-07-2002	CN WO EP US	1483036 T 02051850 A1 1345948 A1 2004063981 A1	17-03-2004 04-07-2002 24-09-2003 01-04-2004

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 03/13927

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C09K11/06 H01L51/30 H05B33/14 C07C13/72

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprästoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 C09K H01L H05B C07C H01K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprästoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, INSPEC, COMPENDEX, CHEM ABS Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 02/077060 A (COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS ; PARHAM AMIR (DE); BECKER HEINRICH (DE)) 3. Oktober 2002 (2002-10-03) Seite 23, Zeile 19 - Zeile 21 Seite 25, Absätze 3,4 -----	1-11
X	EP 1 220 339 A (SEMICONDUCTOR ENERGY LAB) 3. Juli 2002 (2002-07-03) Absätze [0233] - [0235]; Ansprüche -----	1-8, 11-16
X	SALBECK J; YU N; BAUER J; WEISSÖRTEL F; BESTGEN H: "Low molecular organic glasses for blue electroluminescence" SYNTHETIC METALS, Bd. 91, 1997, Seiten 209-215, XP002277588 das ganze Dokument -----	1-8, 11-16
	-/-	

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem Internationalen Anmelde datum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem Internationalen Anmelde datum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmelde datum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"\*&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

22. April 2004

04.08.2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Lehnert, A

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP 03/13927

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 02/051850 A (COVION ORGANIC SEMICONDUCTORS ; BECKER HEINRICH (DE); DROTT JACQUELINE) 4. Juli 2002 (2002-07-04) Seite 15, Zeile 7 - Zeile 10 -----	1-8, 11-16
A	SPREITZER H ET AL: "WHITE AND BLUE TEMPERATURE STABILE AND EFFICIENT OLEDs USING AMORPHOUS SPIRO TRANSPORT AND SPIRO EMITTING COMPOUNDS" PROCEEDINGS OF THE SPIE, SPIE, BELLINGHAM, VA, US, Bd. 4105, 31. Juli 2000 (2000-07-31), Seiten 125-133, XP008017672 ISSN: 0277-786X das ganze Dokument -----	1-8, 11-16
A	WU C C ET AL: "HIGHLY BRIGHT BLUE ORGANIC LIGHT-EMITTING DEVICES USING SPIROBI(FLUORENE-CORED CONJUGATED COMPOUNDS" 22. Juli 2002 (2002-07-22), APPLIED PHYSICS LETTERS, AMERICAN INSTITUTE OF PHYSICS, NEW YORK, US, PAGE(S) 577-579 , XP001130317 ISSN: 0003-6951 das ganze Dokument -----	1-8, 11-16
A	TOKITO S ET AL: "Influence of hole transporting material on device performance in organic light-emitting diode" THIN SOLID FILMS, ELSEVIER-SEQUOIA S.A. LAUSANNE, CH, Bd. 363, Nr. 1-2, März 2000 (2000-03), Seiten 290-293, XP004189329 ISSN: 0040-6090 das ganze Dokument -----	1-8, 11-16

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP 03/13927

## Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1.  Ansprüche Nr.  
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
  
  
  
2.  Ansprüche Nr.  
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
  
  
  
3.  Ansprüche Nr.  
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

## Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

siehe Zusatzblatt

1.  Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
  
2.  Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
  
3.  Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
  
  
  
4.  Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:  
1-8, 11(part) -16(part)

## Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.

Die Zahlung zusätzlicher Recherchengebühren erfolgte ohne Widerspruch.

Internationales Aktenzeichen PCT/ EP 03/13927

WEITERE ANGABEN	PCT/ISA/ 210
<p>Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:</p> <p>1. Ansprüche: 1-8, 11 (part) - 16 (part)</p> <p>Organische Elektrolumineszenz-Vorrichtung, enthaltend eine emittierende Schicht mit einer Mischung aus einem Lochleitermaterial und einem Emissionsmaterial, enthaltend eine oder mehrere Spiro-9,9'-bifluoreneinheiten.</p> <p>---</p> <p>2. Ansprüche: 9, 10, 11(part) - 16 (part)</p> <p>Spiro-9,9'-bifluorenverbindungen der Formel (I), wie in Anspruch 9 beschrieben; Verwendung dieser Verbindungen in organischen Elektrolumineszenz-Vorrichtungen.</p> <p>---</p>	

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 03/13927

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)		Publication date
WO 02077060	A	03-10-2002	WO EP US	02077060 A1 1381639 A1 2004135131 A1		03-10-2002 21-01-2004 15-07-2004
EP 1220339	A	03-07-2002	CN EP JP SG TW US	1362747 A 1220339 A2 2002324680 A 93298 A1 545080 B 2002121860 A1		07-08-2002 03-07-2002 08-11-2002 17-12-2002 01-08-2003 05-09-2002
WO 02051850	A	04-07-2002	CN WO EP US	1483036 T 02051850 A1 1345948 A1 2004063981 A1		17-03-2004 04-07-2002 24-09-2003 01-04-2004